

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

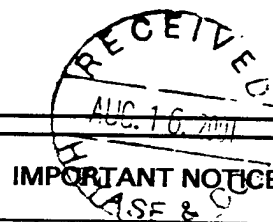
NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

HAYASE, Kenichi
Hayase & Co.
8F, Esaka ANA Bldg.
17-1, Enoki-cho
Suita-shi
Osaka 564-0053
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 02 August 2001 (02.08.01)		
Applicant's or agent's file reference P24529-PO		
International application No. PCT/JP01/00471	International filing date (day/month/year) 25 January 2001 (25.01.01)	Priority date (day/month/year) 25 January 2000 (25.01.00)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al		



1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 02 August 2001 (02.08.01) under No. WO 01/55712

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

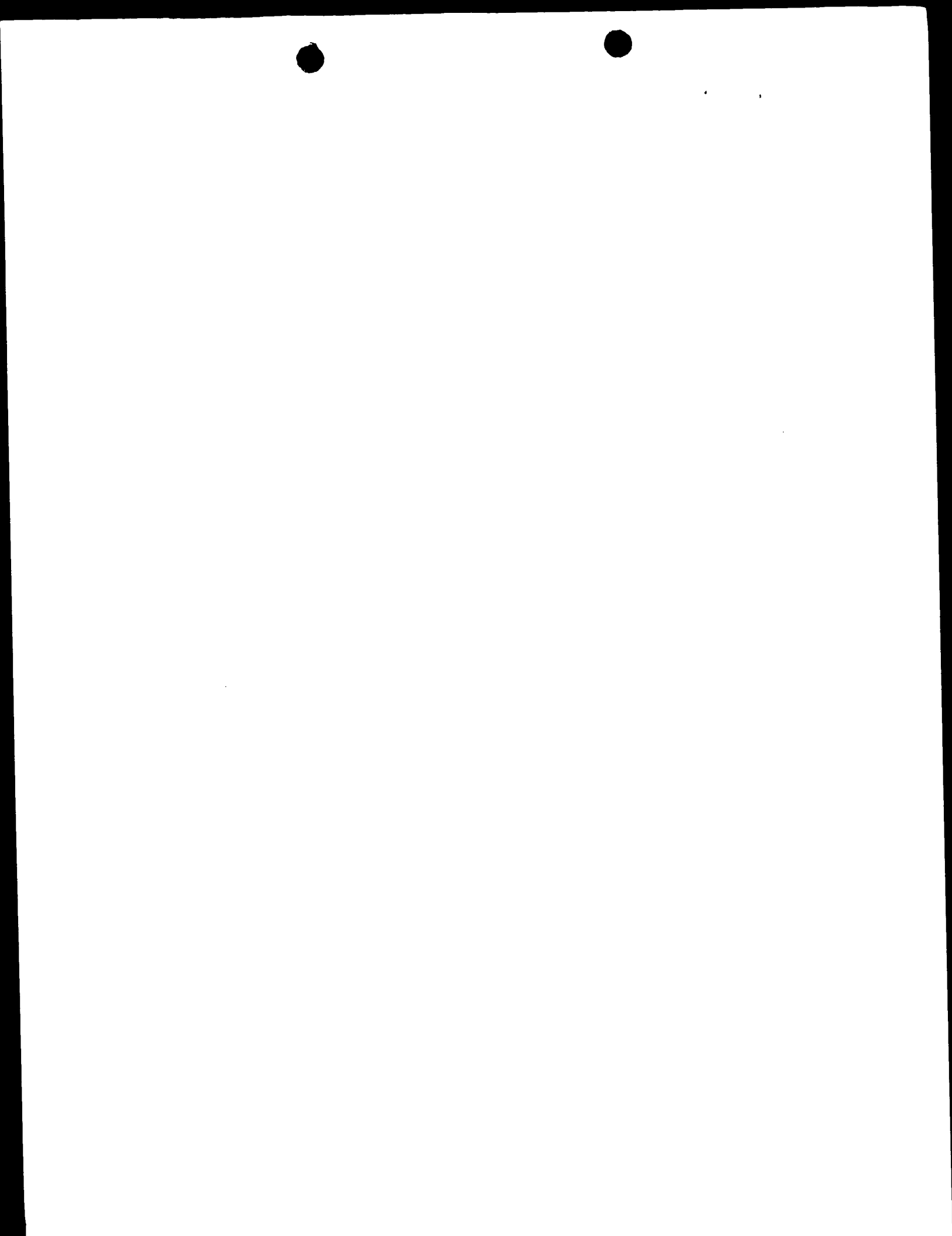
Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

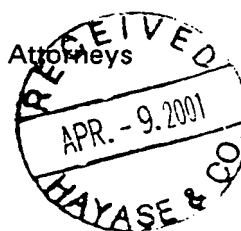
**NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT**

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

HAYASE, Kenichi
Hayase & Co. Patent Attorneys
8F, Esaka ANA Bldg.
17-1, Enoki-cho
Suita-shi
Osaka 564-0053
JAPON

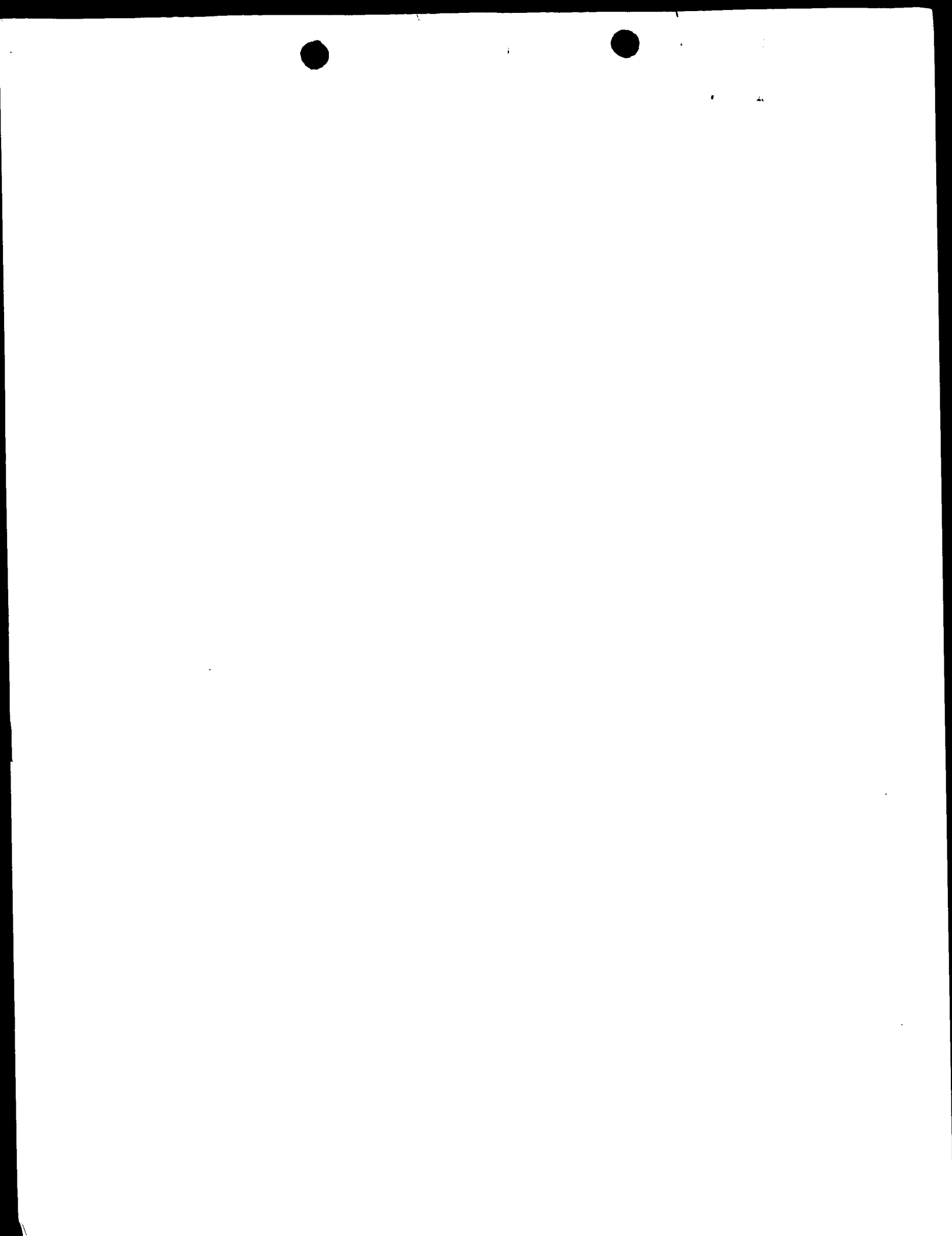


Date of mailing (day/month/year) 27 March 2001 (27.03.01)	
Applicant's or agent's file reference P24529-PO	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP01/00471	International filing date (day/month/year) 25 January 2001 (25.01.01)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 25 January 2000 (25.01.00)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
25 Janu 2000 (25.01.00)	2000/15320	JP	16 Marc 2001 (16.03.01)

<p style="text-align: center;">The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer</p> <p style="text-align: right;">Taïeb Akremi </p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
--	---



P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)

〔P C T 1 8 条、P C T 規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 P24529-P0	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(P C T / I S A / 2 2 0) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 P C T / J P 0 1 / 0 0 4 7 1	国際出願日 (日.月.年) 2 5 . 0 1 . 0 1	優先日 (日.月.年) 2 5 . 0 1 . 0 0
出願人 (氏名又は名称) 松下電器産業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (P C T 1 8 条) の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (P C T 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

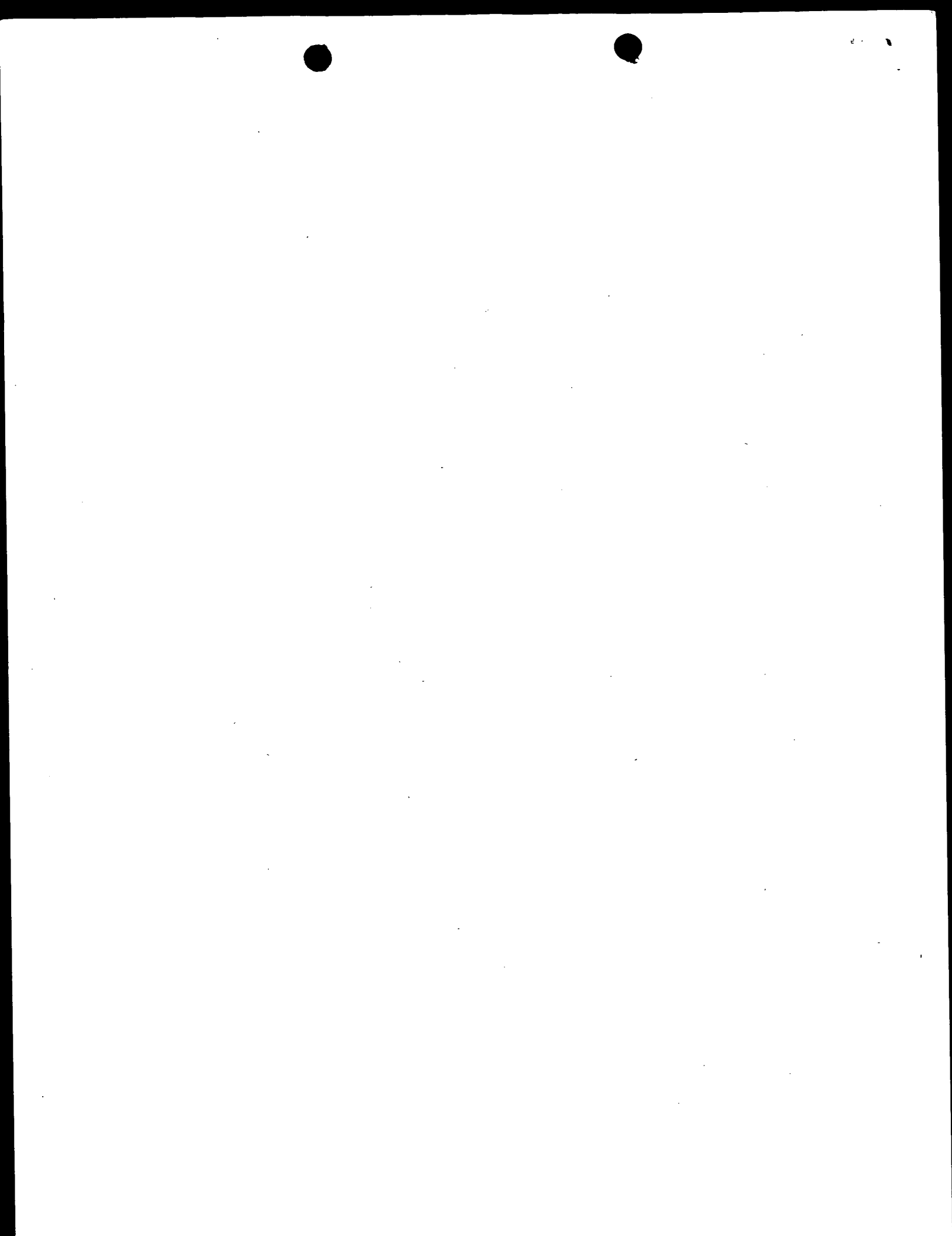
6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 G01N27/327 C12Q1/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 G01N27/327 C12Q1/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP, 735363, A (MATSUSITA ELECTRIC INSUSTRIAL CO., LTD) 2.10月.1 996(02.10.96) JP, 05-196596, A & US, 5264103, A	1-11

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14.02.01

国際調査報告の発送日

27.02.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

郡山 順



2 J

8502

電話番号 03-3581-1101 内線 3252

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 8 月 2 日 (02.08.2001)

PCT

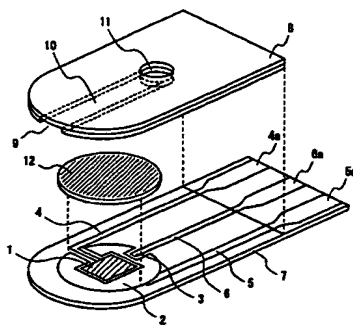
(10) 国際公開番号
WO 01/55712 A1

- (51) 国際特許分類⁷: G01N 27/327, C12Q 1/00 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP01/00471 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 徳永博之(TOKU-
NAGA, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒790-0913 愛媛県松山市畑
(22) 国際出願日: 2001 年 1 月 25 日 (25.01.2001) [JP/JP]; 〒791-8032 愛媛県松山市南齊院町1052 Ehime
(25) 国際出願の言語: 日本語 (JP).
(26) 国際公開の言語: 日本語 (74) 代理人: 弁理士 早瀬憲一(HAYASE, Kenichi); 〒
564-0053 大阪府吹田市江の木町17番1号 江坂全日空
(30) 優先権データ: 特願2000-15320 2000 年 1 月 25 日 (25.01.2000) JP (81) 指定国 (国内): CN, US.
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUS- DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
TRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市 添付公開書類:
大字門真1006番地 Osaka (JP). — 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: MEASURING DEVICE USING BIOSENSOR AND BIOSENSOR USED FOR IT, AND DEDICATED STANDARD LIQUID

(54) 発明の名称: バイオセンサを用いた測定装置並びにそれに使用されるバイオセンサ、および専用標準液



(57) Abstract: A reaction layer (12), reacting with a measuring object substance in a sample liquid, is provided on a working electrode (1), a counter electrode (2) and a third electrode (3) all provided on an insulating substrate (7) so as to bridge the respective electrodes; the content of the measuring object substance is measured from a current value obtained from the working electrode (1) and the counter electrode (2) and generated by a reaction between the substance and the reaction layer; and a type of a sample liquid is discriminated by the difference in oxidation current or oxidation current waveform obtained between the third electrode (3) and the counter electrode (2) or between the third electrode (3) and the working electrode (1); whereby a type of a sample liquid can be discriminated automatically without a manual pre-operation.

(57) 要約:

絶縁基板 7 上に設けられた作用極 1 と対極 2 と第 3 の電極 3 上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層 1 2 を設け、前記作用極 1 と対極間 2 から得られる前記測定対象物質と反応層との反応によって発生する電流値から前記測定対象物質の含有量を計測し、前記第 3 電極 3 と対極 2 間、もしくは前記第 3 電極 3 と作用極 1 間で得られる酸化電流値もしくは酸化電流波形の違いにより検体液種を判別することにより、人為的な前操作無しで、自動的に検体液種を判別することができる。

WO 01/55712 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

明細書

バイオセンサを用いた測定装置並びにそれに使用されるバイオセンサ、および専用標準液

5 技術分野

本発明は、電極式のバイオセンサを用いた測定装置並びにそれに使用されるバイオセンサ、および専用標準液に関する。

背景技術

10 近年、例えば、糖尿病患者の血糖値診断及び日常管理用として電極式バイオセンサを用いた小型簡易血糖値測定装置が普及されている。第4図は、そのグルコースセンサの構造の一例を示す分解斜視図であり、PET（ポリエチレンテレフタレート）の絶縁性の基板7上には、スクリーン印刷などによって、銀リード4，5が形成されている。

15 そして、その銀リード4の先端にはカーボンにより四辺形状の作用極1が形成されており、前記銀リード5の先端には前記作用極1との間に所定の間隙を有して該作用極1を囲むように対極2が形成されている。また、銀リード4，5の他端部にはそれぞれ測定時に測定器に接続される端子部4a，5aが形成されている。このようにして形成された両電極1，2上に、親水性高分子であるCMC（カルボキシルメチルセルロース）層と、酵素としてのGOD（グルコースオキシダーゼ）とメディエータとしてのフェリシアン化カリウムからなる反応層12が、
20 前記両電極1，2を橋絡して覆うように形成されている。

さらに、その上から、先端に開口9を有する検体供給溝10が形成されたカバー8が、前記検体供給溝10の終端部分が前記反応層12の上に位置するように
25 前記基板7上に貼り付けられ、前記検体供給溝10の終端部には、空気孔11が形成されている。

以上の構成からなるセンサを、血糖値を測定する前記小型簡易測定装置に装着し、前記検体供給溝10の開口9へ測定すべき血液サンプルを触れさせると、検体供給溝10を通じて毛管現象によって、反応層12へ一定量（約3 μ L）のサ

ンプルが導入されて、所定の反応が起こり、その反応にともなう電流値を前記端子部 4 a, 5 a を介して前記測定装置側で読み取り、その電流値から測定対象物質であるグルコースの含有量を計測するものである。

以上のような小型簡易測定装置において、最近では、特に、測定データの管理
5 や加工等、データマネージメントの分野に重点が置かれており、例えば、測定値を測定装置が順次記憶し、経時的な変化、平均値などが容易に確認出来るように構成されている。また、正確なデータマネージメントを行うにあたって、バイオセンサ及び測定装置の精度を維持管理する必要があるため、定期的に専用のグルコース標準液を用いて測定し、その精度管理を行うようになっている。

- 10 前記測定装置の精度の維持管理を行う場合、専用のグルコース標準液を用いた精度管理のための測定データと、通常検体として用いられる血液での測定データとが混同して処理されないように、事前に測定装置上で特定の手動操作を行い、標準液での測定を行う際には標準液測定モードに切り替えを行うようにし、血液
15 測定データと専用のグルコース標準液データとを識別する等の工夫がなされている。

- しかし、測定装置において手動による前操作が必要な場合には、人為的な誤操作、操作忘れ等で標準液測定データを血液測定データと誤認識してデータ管理してしまうというような問題があり、特に、目、指先の不自由なユーザにとっては、上述したような前操作をすることが困難であり、検体液種を自動的に無操作にて
20 判別できるシステムが望まれていた。

本発明は、以上のような問題を解決するためになされたものであり、人為的な前操作なしに自動的に検体液種を判別しえる測定装置並びにそれに使用されるバイオセンサ、及び専用標準液を提供することを目的とする。

25 発明の開示

本発明の請求の範囲第 1 項に記載の発明は、絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第 3 の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を有するバイオセンサを用いた測定装置であって、前記作用極と対極間から得られる前記測定対象物質と反応層との反応によって発生する電

流値から前記測定対象物質の含有量を計測するとともに、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を判別することを特徴とするものである。

- これにより、検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を自動判別することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

- また、本発明の請求の範囲第2項に記載の発明は、請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、前記酸化電流値に基づく検体液種の判別が、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値と、予め定められた所定のしきい値とを比較することにより行うことを特徴とするものである。

これにより、検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を自動判別することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

- また、本発明の請求の範囲第3項に記載の発明は、請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、前記酸化電流値に基づく検体液種の判別が、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値の時間変化量に基づいて行うことを特徴とするものである。

- これにより、検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を自動判別することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

- また、本発明の請求の範囲第4項に記載の発明は、請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、判別に用いられる前記酸化電流値は、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間に流れる電流値が予め定められた電流値に達した後、さらに、一定時間が経過した時点で測定された電流値であることを特徴とするものである。

これにより、検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて、より精度よく検体液種を自動判別することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能にな

る。

また、本発明の請求の範囲第5項に記載のバイオセンサは、絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第3の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を設けるとともに、前記絶縁基板上に、前記作用極と対極と第3の電極のそれぞれに電氣的に接続している接続端子を設けたことを特徴とするものである。

これにより、バイオセンサに検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値を前記バイオセンサを用いた測定装置により測定することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第6項に記載のバイオセンサは、請求の範囲第5項に記載のバイオセンサであって、前記第3の電極は、作用極および対極に比べ酸化されやすい材料により構成されていることを特徴とするものである。

これにより、バイオセンサに導入された検体液中に有機酸が含まれるか否かにより、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値、及びその変化特性が大きく異なることとなるため、前記バイオセンサを用いた測定装置により、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第7項に記載の発明は、請求の範囲第5項に記載のバイオセンサであって、前記第3の電極の材料の溶解電位が、当該バイオセンサに印加される印加電圧よりも低い材料であることを特徴とするものである。

これにより、バイオセンサに検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値を前記バイオセンサを用いた測定装置により測定することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第8項に記載の発明は、請求の範囲第7項に記載のバイオセンサであって、前記第3の電極の材料が、銀、銅、亜鉛、あるいはそれらを含んだ混合材料であることを特徴とするものである。

これにより、バイオセンサに検体液導入後、第3の電極と対極間、もしくは第

3の電極と作用極間で得られる酸化電流値を前記バイオセンサを用いた測定装置により測定することができ、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第9項に記載の発明は、絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第3の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を設けたバイオセンサを用いて、前記作用極と対極間から得られる前記測定対象物質と反応層との反応によって発生する電流値から前記測定対象物質の含有量を計測するとともに、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を判別するバイオセンサを用いた測定装置に用いられるバイオセンサ専用標準液であって、前記第3の電極の酸化により得られる酸化電流値を抑制する物質が配合されていることを特徴とするものである。

これにより、この専用標準液を導入した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値と血液を測定した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値とが顕著に異なるものとなるため、前述したバイオセンサを用いた測定装置を利用して、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第10項に記載の発明は、請求の範囲第9項に記載のバイオセンサ専用標準液であって、前記第3の電極の酸化により得られる酸化電流を抑制する物質が有機酸であることを特徴とするものである。

これにより、この専用標準液を導入した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値と血液を測定した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値とが顕著に異なるものとなるため、前述したバイオセンサを用いた測定装置を利用して、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

また、本発明の請求の範囲第11項に記載の発明は、請求の範囲第10項に記載のバイオセンサ専用標準液であって、前記有機酸が、安息香酸、クエン酸、サリチル酸、ソルビン酸、デヒドロアセト酸、プロピオン酸の少なくとも一つであることを特徴とするものである。

これにより、この専用標準液を導入した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値と血液を測定した際の前記第3の電極から発生する酸化電流値とが顕著に

異なるものとなるため、前述したバイオセンサを用いた測定装置を利用して、人為的な前操作無しに、自動的に検体液種を判別することが可能になる。

図面の簡単な説明

- 5 第1図は、本発明の一実施形態におけるグルコースセンサの分解斜視図である。
第2図は、本発明の一実施形態におけるグルコース測定器の斜視図である。
第3図は、本発明の一実施形態における酸化電流波形を示す図である。
第4図は、従来グルコースセンサの分解斜視図である。

10 発明を実施するための最良の形態

実施の形態

第1図は本発明の一実施の形態におけるグルコースセンサの構造を示す分解斜視図であり、第4図に示す従来のセンサと同様の構成部分については同一符号を付している。

- 15 第1図において、従来のセンサと異なる点は、銀リード4、5の他にさらに銀リード6が設けられた点であり、その銀リード6の先端には検体液種判別用の第3の電極3が、前記作用極1、対極2の近傍で空気孔11側に配置されており、さらに、その他端には接続端子部6aが形成されている。また、作用極1、対極2、及び第3の電極3の上には、前記反応層12が、前記作用極1、対極2、及び第3の電極3を橋絡して覆うように形成されている。なお、この第3の電極3
20 の配置は、測定検体と接触する位置であればどの位置に配置しても良い。

また、前記第3の電極3は、前記作用電極1、対極2に比べて酸化されやすい材質からなるものであり、例えば、銀、銅、亜鉛、或はそれらを含んだ混合材料が該当する。本実施の形態では、前記第3の電極3として銀電極を用いる。

- 25 以上のような構成をもつセンサは、検体供給溝10の開口9へサンプルを触れさせると、毛管現象によって反応層12及び各電極部1、2、3へ一定量（ここでは、約3 μ Lとする）のサンプルが導入されるようになっており、そのサンプルの吸引は、第3の電極3まで到達して止まるものである。

一方、前記センサに対して測定器としては、第2図に示されるものが使用され

ており、センサ 1 3 が装着されると、測定器 1 4 の電源がオンし、作用極 1 と第 3 の電極 3 との間、あるいは対極 2 と第 3 の電極 3 との間に 0.5 V の電圧が印加された待機状態となる。この印加電圧は、第 3 の電極 3 に用いる材質の溶解電位よりも低い電圧であり、その印加電圧値は第 3 の電極 3 の材質により異なるものである。

前記測定器 1 4 の待機状態中にセンサ 1 3 にサンプルが導入されると、検体供給溝 1 0 を通じて毛管現象により、反応層 1 2 及び各電極部へ一定量（ここでは、約 3 μ L とする）のサンプルが導入される。その後、第 3 の電極 3 で測定される酸化電流が一定量（ここでは、0.3 μ A / 0.5 秒とする）以上になると、一旦、センサ 1 3 への電圧の印加は停止され、ある所定の時間、反応が培養される。

そして、前記所定の時間が経過した後に、電圧を再印加し、血糖値に対応した電流値を測定する。この血糖値に対応した電流値の測定は、具体的には、作用極 1 と対極 2 間、あるいは作用極 1 と対極 2、および第 3 の電極 3 間へ 0.5 V の電圧を印加し、その時の作用極 1 で得られる電流値を測定することにより行う。

次に、本発明によるグルコースセンサを用いた測定器 1 4 に用いる専用標準液について述べる。

前記専用標準液は、一定量のグルコースを含有する従来の標準液中に、酸化電流を抑制する物質をさらに配合したことを特徴としている。酸化電流を抑制する物質としては、有機酸であればよく、例えば、安息香酸、クエン酸、サリチル酸、ソルビン酸、デヒドロアセト酸、プロピオン酸等が挙げられる。本実施の形態においては、専用標準液に 0.1 重量%の安息香酸を配合したものを使用する。なお、安息香酸の添加量は、0.01 重量%以上であれば同様の作用を有する。

次に、本発明によるグルコースセンサを用いて自動的に検体液種を判別する方法について説明する。

まず、第 1 図に示す第 3 の電極 3 に、対極 2 を基準にして 0.5 V の電圧を印加し、測定検体が導入されるまで待機する。なお、ここでは、第 3 の電極 3 に、対極 2 を基準にして 0.5 V の電圧を印加する場合について説明するが、第 3 の電極 3 に、作用極 1 を基準にして 0.5 V の電圧を印加してもよい。

次に、測定検体が検体供給溝 1 0 の開口 9 から導入され、第 3 の電極 3 まで到

達すると、第3の電極3に酸化電流が発生する。

第3図は、測定検体が導入された後に第3の電極3により得られる酸化電流値を示したものであり、第3(a)図は、通常の血液測定時の酸化電流値を示し、第3(b)図は、専用標準液測定時の酸化電流値を示す。

- 5 第3図に示すように、専用標準液測定時の酸化電流は、標準液中の安息香酸の効果により抑制される為、時間の経過とともに第3(a)図に示す通常の血液測定時の電流値の上昇度合いに比べ、第3(b)図に示す専用標準液の電流値の上昇度合いの方が顕著に小さくなる。

- 10 そのため、測定器14は、前記センサ13に測定検体が導入され、予め定めた一定時間が経過した後に第3の電極3から得られる酸化電流値を検出し、その検出した酸化電流値を、予め決定されたしきい値と比較することにより、検体液種が標準液試料であるのか、血液試料であるのかを自動的に判別することが出来る。

- 15 また、検体液種の判別を行う酸化電流値の違いは、第3図に示すように、時間の経過とともに顕著に現れるため、電圧を再印加して血糖値に対応する電流値の測定を行う直前の第3の電極3から得られる酸化電流値を検体液種の判別に用いると、より正確な検体液種の判別を行うことが可能となる。

次に、検体液種の判別に用いるしきい値について説明する。

- 20 第3の電極3から検出される酸化電流値は、基質であるグルコース濃度の影響により変動するため、そのグルコース濃度の影響を考慮してしきい値を決定することにより、更に精度の高い判別が可能となる。

以下に、このグルコース濃度の影響を考慮したしきい値の決定方法についての具体例を示す。

- 25 測定サンプルとしてそれぞれ、50、200、600(mg/dl)の3種類グルコース濃度を有する血液試料、及び標準液試料を用意した。なお、標準液中には安息香酸を重量比で0.1%配合している。

前記しきい値は、第1図に示す第3の電極3に、作用極1を基準にして0.5Vの電圧を印加した後、これら6種類のサンプルをセンサ13にそれぞれ導入した後、0.5秒毎に前記第3の電極3から得られる酸化電流値を測定し、その0.5秒間の電流値の上昇が0.3 μ Aに達した時点で一旦測定を中止し、その時点

から 1 秒後の各サンプルの酸化電流値を測定して比較することで決定する。上述した測定による 6 種類のサンプルの測定結果は、表 1 の通りである。

表 1

試料種	グルコース濃度 (mg/dl)	酸化電流値 (μ A)
全血	20	5
	200	11
	600	30
標準液	20	0.4
	200	0.9
	600	2.4

つまり、表 1 に示すように、標準液の酸化電流値は、全血試料の酸化電流値に比べて顕著に小さいため、グルコース濃度が 20～600 (mg/dl) の間では、以下に示すようなしきい値を用いることにより血液試料と標準液試料の判別を行うことができる。

- 1) 酸化電流値 $\geq 3 \mu$ A のときは、血液試料
- 2) 酸化電流値 $< 3 \mu$ A のときは、標準液試料

このように、予め定めた一定時間を経過した後に第 3 の電極 3 から得られる酸化電流値を検出し、その検出した酸化電流値を、予め決定されたしきい値と比較することにより、検体液種が標準液試料であるのか、血液試料であるのかを自動的に判別することができる。また、以上のことを事前に測定器 14 にプログラムしておけば、電圧の再印加後の血糖値に対応した電流値を表示、保管する際に、全自動で全血試料と標準液試料を区別して表示、保管することができる。

なお、本実施の形態ではグルコースセンサを例に挙げたが、コレステロール、乳酸など、簡易型電極バイオセンサ用の測定器、センサ、標準液であれば同様の効果が得られる。

また、本実施の形態では、第 3 の電極 3 から得られる酸化電流値と所定のしきい値とを比較することにより検体液種の判別を行うものについて説明したが、第

3の電極3から得られる酸化電流値の時間変化量の違いに基づいて検体液種を判別するものであってもよい。

産業上の利用可能性

- 5 本発明は、人為的な前操作無しに自動的に検体液種を判別し得る測定装置並びにそれに使用されるセンサ、及び専用標準液を提供するもので、作用極と対極の他に第3の電極を設け、前記専用標準液を検体とした際の前記第3の電極で得られる酸化電流値と、血液を検体とした際の前記第3の電極で得られる酸化電流とが顕著に異なることを利用し、検体液種を判別するものである。

請求の範囲

1. 絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第3の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を有するバイオセンサを用いた測定装置であって、

- 5 前記作用極と対極間から得られる前記測定対象物質と反応層との反応によって発生する電流値から前記測定対象物質の含有量を計測するとともに、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を判別することを特徴とするバイオセンサを用いた測定装置。

2. 請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、

- 10 前記酸化電流値に基づく検体液種の判別は、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値と、予め定められた所定のしきい値とを比較することにより行うことを特徴とするバイオセンサを用いた測定装置。

3. 請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、

- 15 前記酸化電流値に基づく検体液種の判別は、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値の時間変化量に基づいて行うことを特徴とするバイオセンサを用いた測定装置。

4. 請求の範囲第1項に記載のバイオセンサを用いた測定装置であって、

- 20 判別に用いられる前記酸化電流値は、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間に流れる電流値が予め定められた電流値に達した後、さらに、一定時間が経過した時点で測定された電流値であることを特徴とするバイオセンサを用いた測定装置。

5. 絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第3の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を設けるとともに、前記絶縁基板上に、前記作用極と対極と第3の電極のそれぞれに電氣的に接続して

25 いる接続端子を設けたことを特徴とするバイオセンサ。

6. 請求の範囲第5項に記載のバイオセンサであって、

前記第3の電極は、作用極および対極に比べ酸化されやすい材料により構成されていることを特徴とするバイオセンサ。

7. 請求の範囲第5項に記載のバイオセンサであって、

前記第3の電極の材料の溶解電位が、当該バイオセンサに印加される印加電圧よりも低い材料であることを特徴とするバイオセンサ。

8. 請求の範囲第7項に記載のバイオセンサであって、

5 前記第3の電極の材料が、銀、銅、亜鉛、あるいはそれらを含んだ混合材料であることを特徴とするバイオセンサ。

9. 絶縁基板上に設けられた作用極と対極と第3の電極上に、それぞれの電極を橋絡するように検体液中の測定対象物質と反応する反応層を設けたバイオセンサを用いて、前記作用極と対極間から得られる前記測定対象物質と反応層との反応
10 によって発生する電流値から前記測定対象物質の含有量を計測するとともに、前記第3の電極と対極間、もしくは前記第3の電極と作用極間で得られる酸化電流値に基づいて検体液種を判別するバイオセンサを用いた測定装置に用いられるバイオセンサ専用標準液であって、

前記第3の電極の酸化により得られる酸化電流値を抑制する物質が配合されて
15 いることを特徴とするバイオセンサ専用標準液。

10. 請求の範囲第9項に記載のバイオセンサ専用標準液であって、

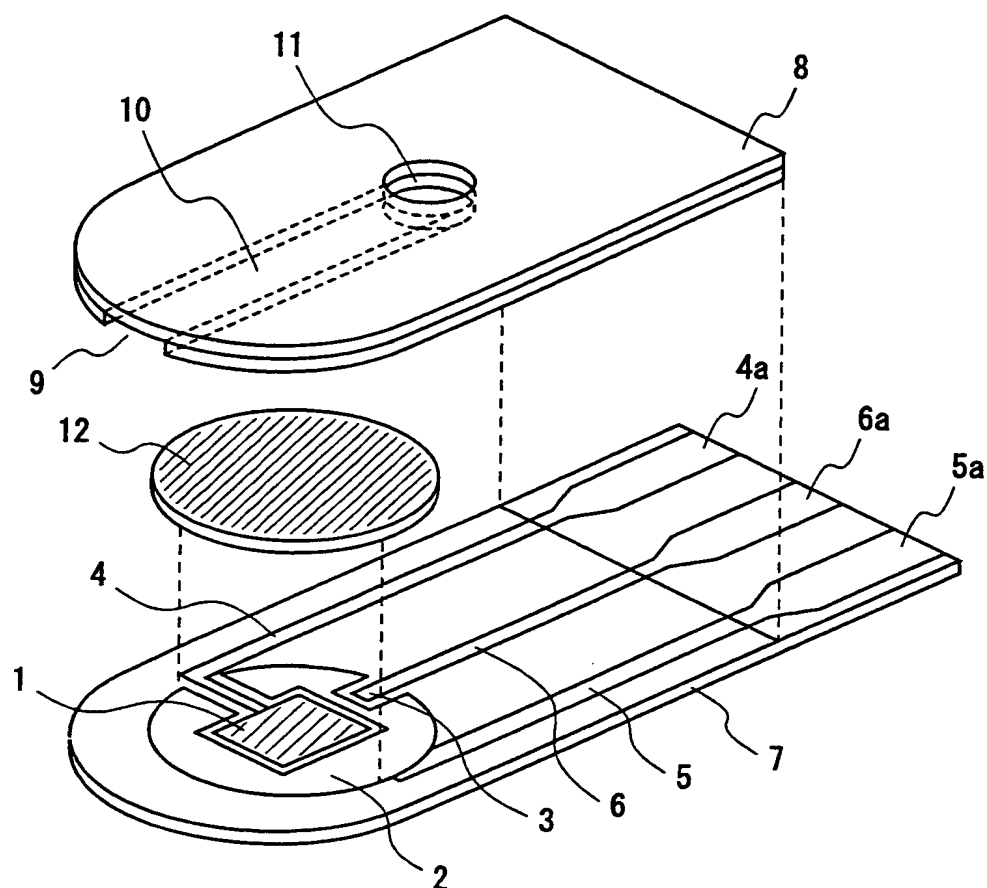
前記第3の電極の酸化により得られる酸化電流を抑制する物質が、有機酸であることを特徴とするバイオセンサ専用標準液。

11. 請求の範囲第10項に記載のバイオセンサ専用標準液であって、

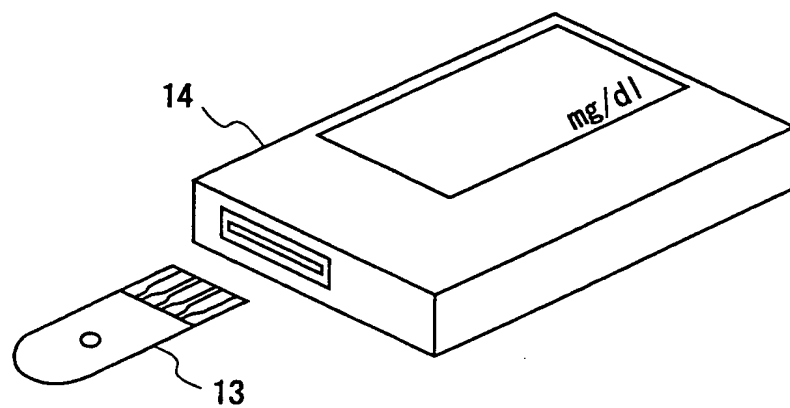
20 前記有機酸が、安息香酸、クエン酸、サリチル酸、ソルビン酸、デヒドロアセト酸、プロピオン酸の少なくとも一つであることを特徴とするバイオセンサ専用標準液。

1/3

第1図



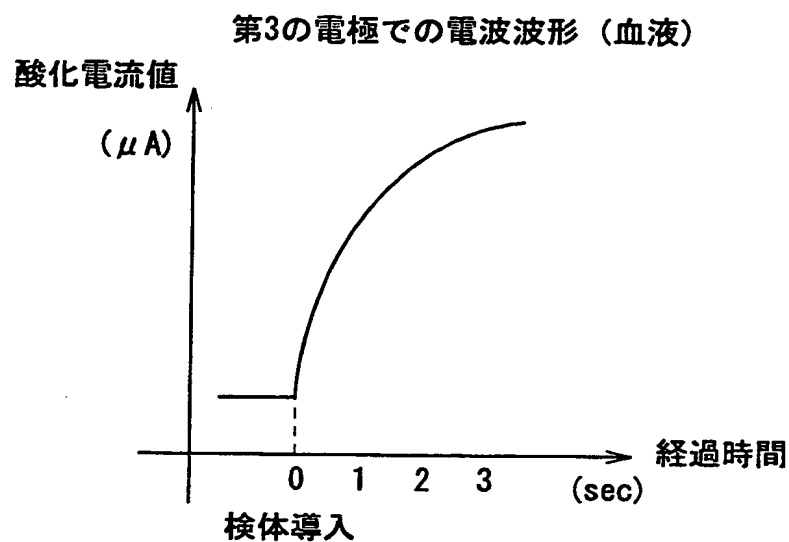
第2図



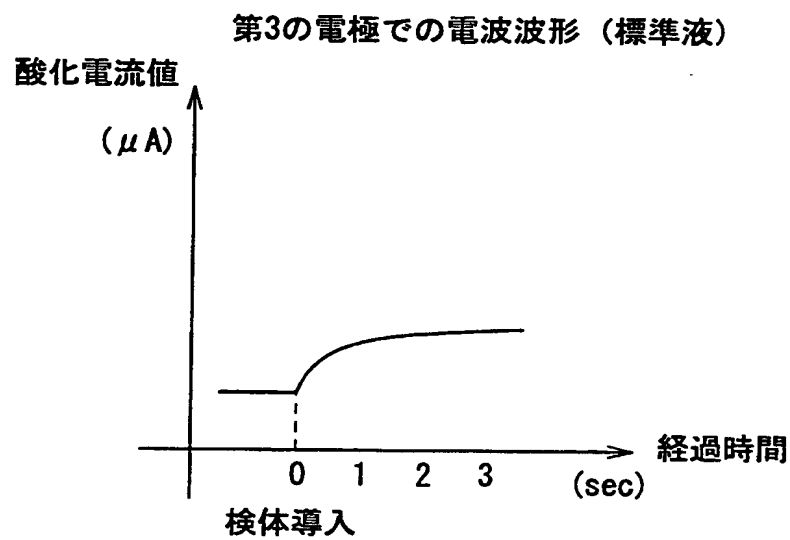


2/3

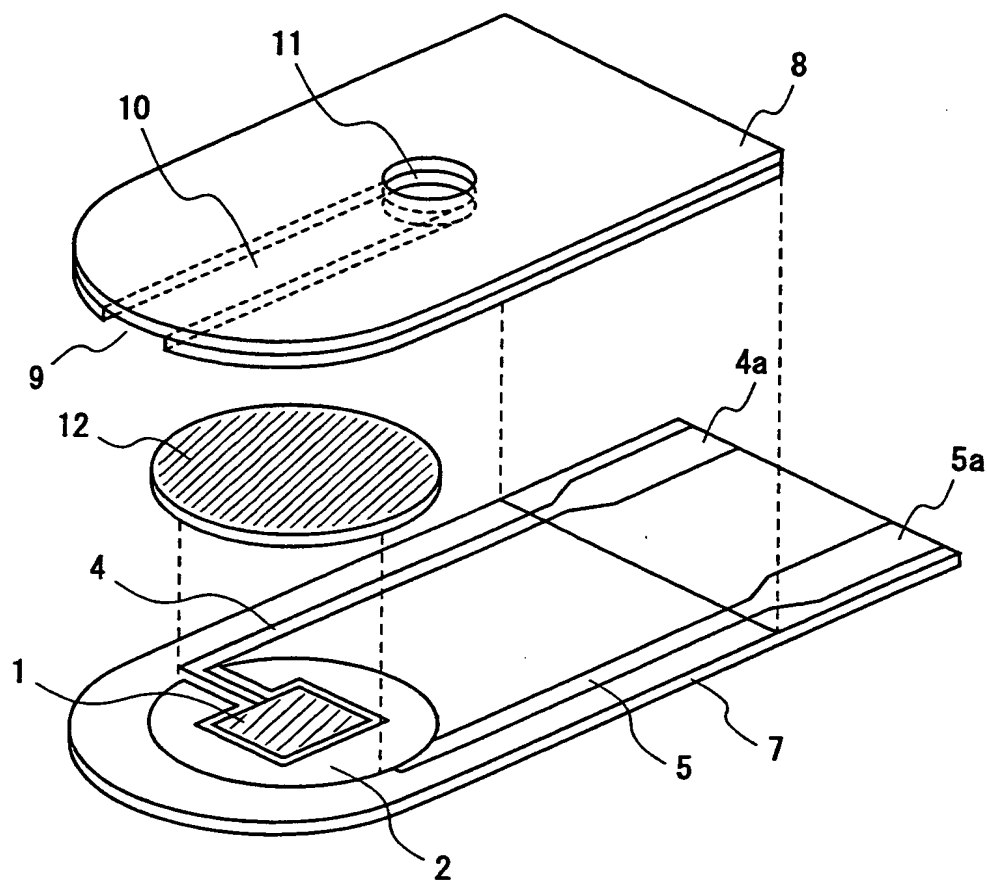
第3(a) 図



第3(b) 図



第4図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/00471

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ G01N27/327 C12Q1/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ G01N27/327 C12Q1/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 735363, A (MATSUSITA ELECTRIC INSUSTRIAL CO., LTD) , 02 October, 1996 (02.10.96) JP, 05-196596, A & US, 5264103, A	1-11

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
14 February, 2001 (14.02.01)

Date of mailing of the international search report
27 February, 2001 (27.02.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 G01N27/327 C12Q1/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 G01N27/327 C12Q1/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP, 735363, A (MATSUSITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD) 2. 10月. 1 996 (02. 10. 96) JP, 05-196596, A & US, 5264103, A	1-11

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14. 02. 01

国際調査報告の発送日

27.02.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

郡山 順

2 J

8502

電話番号 03-3581-1101 内線 3252

